

Métrieologie Nucléaire

—

Fascicule des Travaux Pratiques

Licence Professionnelle
Métrieologie Chimique et Nucléaire

2024 – 2025

Enseignants :

Anne-Laure NIVESSE

Olivier PERON

Table des matières

Organisation du module	4
Rappel des consignes de sécurité	5
Quelques rappels sur la radioactivité.....	6
1. Les différents types de radioactivité.....	6
2. La loi de la décroissance radioactive.....	7
TP-1 : SPECTROMETRIE ALPHA	8
I. OBJECTIFS DU TP	8
II. RAPPELS THEORIQUES	8
1. La radioactivité alpha	8
2. Principe de la spectrométrie alpha.....	8
3. L'analyse des spectres alpha.....	9
4. Préparations pour l'analyse d'échantillons.....	11
III. PARTIE EXPERIMENTALE	12
1. Calibration en énergie.....	12
2. Caractérisation du détecteur	12
3. Analyse du polonium dans les eaux d'un ancien site minier.....	12
IV. COMPTE RENDU – TP-1 : SPECTROMETRIE ALPHA	13
1. Calibration en énergie.....	13
2. Caractérisation du détecteur	14
3. Analyse du polonium dans les eaux d'un ancien site minier.....	15
TP-2 : SCINTILLATION LIQUIDE	17
I. OBJECTIFS DU TP	17
II. RAPPELS THEORIQUES	17
1. Principe de la scintillation liquide	17
2. Analyse des spectres de scintillation liquide	19
3. Phénomène de quenching et courbe d'efficacité (ou courbe de quenching)	21
III. PARTIE EXPERIMENTALE	22
1. Optimisation du ratio $V_{\text{échantillon}} / V_{\text{liquide scintillant}}$ ($V_{\text{total}} = 5 \text{ mL}$).....	22
2. Courbe de quenching	22
3. Mesure d'un échantillon inconnu	23
4. Contrôles radiologiques (frottis).....	23
IV. COMPTE RENDU – TP-2 : SCINTILLATION LIQUIDE.....	24
1. Optimisation du ratio $V_{\text{échantillon}} / V_{\text{liquide scintillant}}$ ($V_{\text{total}} = 5 \text{ mL}$).....	24

2.	Courbe de quenching	25
3.	Mesure d'un échantillon inconnu	26
TP-3 :	SPECTROMETRIE GAMMA.....	27
I.	OBJECTIFS DU TP	27
II.	RAPPELS THEORIQUES	27
1.	La radioactivité gamma	27
2.	Principe de la spectrométrie gamma.....	27
3.	L'analyse des spectres gamma	29
III.	PARTIE EXPERIMENTALE	32
1.	Identification des interactions gamma-détecteur	32
2.	Calibration en énergie.....	32
3.	Caractérisation manuelle du détecteur.....	32
4.	Caractérisation du détecteur à l'aide de la modélisation des géométries de détection 32	
5.	Analyse d'un échantillon par spectrométrie gamma	33
IV.	COMPTE RENDU – TP-3 : SPECTROMETRIE GAMMA	34
1.	Identification des interactions gamma-détecteur	34
2.	Calibration en énergie.....	35
3.	Caractérisation manuelle du détecteur.....	35
4.	Caractérisation du détecteur à l'aide de la modélisation des géométries de détection 36	
5.	Analyse d'échantillons par spectrométrie gamma	37

Organisation du module

Le planning pour les séances de travaux pratiques est le suivant :

	Groupe A	Enseignant	Groupe B	Enseignant
13-févr	TP3	O. Péron	TP2	A-L. Nivesse
18-févr	TP1		TP3	
25-févr	TP2		TP1	

Chaque séance de TP doit être soigneusement préparée à l'avance. Cela implique de lire le polycopié pour bien assimiler la partie théorique et comprendre les attentes spécifiques de la séance. Il est important de prendre connaissance du matériel nécessaire, du déroulement prévu et des différentes étapes des manipulations à réaliser. Une préparation rigoureuse permet de gagner en efficacité et en clarté pendant le TP, en suivant le protocole avec attention, en notant correctement les observations et en posant des questions si besoin. Ce travail en amont est essentiel pour tirer pleinement profit de chaque séance.

Vous serez répartis en binôme ou trinôme.

Les comptes-rendus des TP (1 par binôme ou trinôme) sont notés et à rendre exclusivement en fin de séance.

La note globale repose sur l'évaluation de ce compte-rendu et sur une évaluation individuelle en fonction de la qualité de votre préparation préalable et de votre attitude et votre implication lors des séances de TP.

Pour chaque séance, une partie théorique (environ 30 à 45 min) précédera la partie expérimentale pour reprendre les grandes notions abordées en TP.

N'oubliez pas de vous munir de votre calculatrice.

Rappel des consignes de sécurité

Les travaux pratiques de métrologie nucléaire ont lieu dans les salles de laboratoire de Radiochimie à Subatech. Vos activités se dérouleront dans des zones surveillées et pour lesquelles **il est essentiel d'appliquer et de respecter scrupuleusement des règles de sécurité.**

Tout manquement à ces règles conduira à une exclusion définitive de l'étudiant à la séance de TP.

Une blouse et des lunettes de protection vous seront fournies à l'entrée des salles de laboratoire.

Les téléphones portables, les tablettes et les ordinateurs sont interdits dans les salles de laboratoire.

Un dosimètre vous sera remis pour chaque binôme. Le port visible de ce dosimètre est obligatoire pendant toute la durée de votre temps dans les salles de laboratoire.

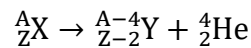
L'enseignant qui vous encadrera pendant la séance de TP vous énoncera l'ensemble des règles de sécurité à suivre. De façon générale, il est nécessaire de rester de façon permanente auprès de votre encadrant et de ne travailler QUE sur les paillasses qui vous seront attribuées.

Quelques rappels sur la radioactivité

1. Les différents types de radioactivité

La radioactivité est la transformation spontanée d'un noyau atomique instable (radionucléide) en un noyau plus stable, accompagnée d'une émission de rayonnements. Il en existe trois types principaux :

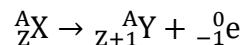
Radioactivité alpha (α) : Émission d'une particule alpha, composée de 2 protons et 2 neutrons (équivalent à un noyau d'hélium ${}^4_2\text{He}$).



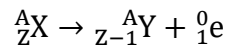
- Masse et charge importantes.
- Faible pouvoir pénétrant (arrêtée par une feuille de papier ou la peau).
- Très ionisante (dangereuse si inhalée ou ingérée).

Radioactivité bêta (β) :

Bêta moins (β^-) : Émission d'un électron et d'un antineutrino lorsque qu'un neutron se transforme en proton.

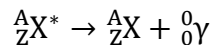


Bêta plus (β^+) : Émission d'un positron et d'un neutrino lorsque qu'un proton se transforme en neutron.



- Pouvoir pénétrant moyen (arrêtée par une plaque métallique fine).
- Ionisation modérée.

Radioactivité gamma (γ) : Émission d'un rayonnement électromagnétique (photons gamma) par un noyau excité qui revient à un état d'énergie plus bas.



- Très pénétrant (nécessite du plomb épais ou du béton pour être atténué).
- Faible ionisation directe (interagit par effet Compton ou création de paires).

2. La loi de la décroissance radioactive

La décroissance radioactive est régie par une loi probabiliste :

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda \Delta t}$$

Avec :

- $N(t)$ le nombre de noyaux restants au temps t_2 ,
- N_0 le nombre initial de noyaux au temps t_1 ,
- Δt l'écart entre le temps t_2 et le temps t_1 ,
- λ la constante de désintégration caractéristique du radionucléide (en s^{-1}).

La constante de désintégration se détermine à partir de la période radioactive (ou temps de demi-vie, $T_{1/2}$ en seconde) propre à chaque radionucléide. Il s'agit du temps nécessaire pour que la moitié des noyaux initiaux se désintègrent :

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda}$$

L'activité radioactive A (en Bq) peut alors être déduite de cette loi puisqu'elle correspond au nombre de désintégration par unité de temps (**1 Bq = 1 désintégration par seconde** ou dps), selon :

$$A(t) = \lambda \cdot N(t)$$

TP-1 : SPECTROMETRIE ALPHA

I. OBJECTIFS DU TP

- Comprendre les principes fondamentaux de la spectrométrie alpha.
- Apprendre à utiliser un spectromètre alpha (étalonnage en énergie, caractérisation du détecteur et traitement de résultats).
- Préparer des supports pour l'analyse d'échantillons par spectrométrie alpha.
- Identifier des radionucléides en fonction de leurs propriétés.
- Analyser des échantillons pour la détection et la quantification de radionucléides.
- Évaluer les performances analytiques d'un spectromètre alpha.

II. RAPPELS THEORIQUES

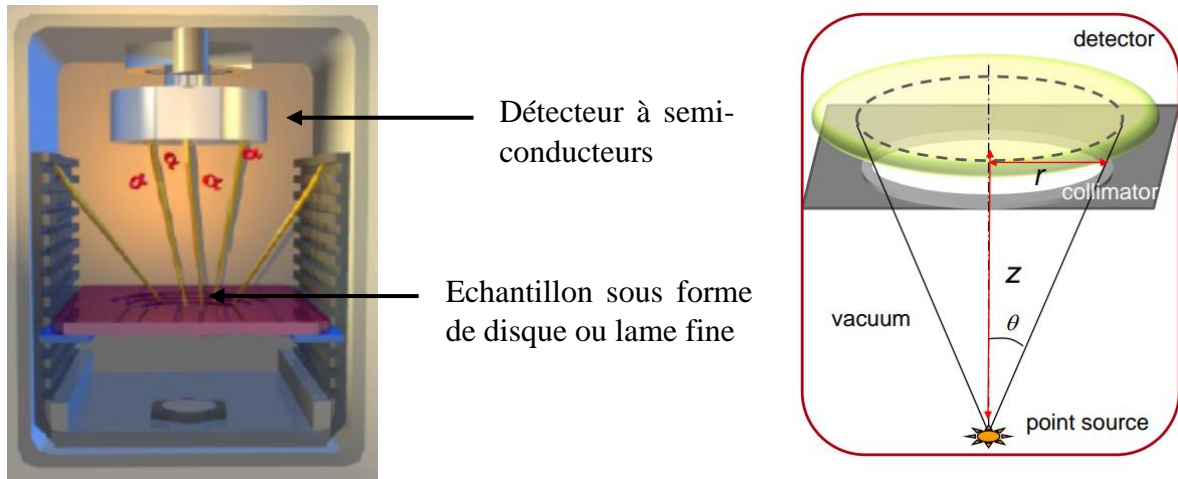
1. La radioactivité alpha

La radioactivité alpha est un type de désintégration radioactive dans lequel un noyau instable émet une particule alpha pour atteindre un état plus stable. Une particule alpha est constituée de deux protons et de deux neutrons, identique à un noyau d'hélium, ce qui lui confère une masse relativement élevée et une charge positive. L'émission d'une particule alpha réduit le nombre de protons et de neutrons du noyau émetteur, modifiant ainsi l'élément chimique. Ce type de radioactivité est commun chez les noyaux lourds comme ceux de l'uranium, du radium ou du plutonium. Par exemple, un noyau de radium-226 (^{226}Ra) devient du radon-222 (^{222}Rn) après une désintégration alpha.

En raison de leur grande masse et de leur faible vitesse comparée à d'autres particules émises lors de désintégrations radioactives, les particules alpha ont une portée limitée dans la matière. Elles peuvent être arrêtées facilement, par exemple, par une simple feuille de papier ou la couche externe de la peau. Cependant, elles sont dangereuses si elles sont inhalées ou ingérées, car elles déposent leur énergie sur une très courte distance dans les tissus biologiques, causant des dommages significatifs.

2. Principe de la spectrométrie alpha

En spectrométrie alpha, des détecteurs spécialisés, généralement des détecteurs à semi-conducteurs en silicium, sont employés pour analyser les particules alpha émises. Ces détecteurs offrent une haute résolution et une grande précision, essentielles pour identifier les isotopes présents et leurs caractéristiques énergétiques. Les détecteurs à semi-conducteurs fonctionnent en transformant l'énergie des particules alpha incidentes en un signal électrique mesurable. Lorsqu'une particule alpha pénètre dans le semi-conducteur, elle transfère son énergie aux électrons du matériau, générant des paires électron-trou (électron libre et "trou" où manque un électron). Sous l'influence d'un champ électrique appliqué, ces charges se déplacent vers des électrodes opposées, générant ainsi un courant électrique. L'amplitude de ce courant est proportionnelle à l'énergie de la particule alpha, ce qui permet de déterminer précisément cette énergie et de construire un spectre alpha.



Les détecteurs utilisés pour la spectrométrie alpha sont souvent très fins pour maximiser la probabilité d'interaction avec les particules alpha, qui ont une faible profondeur de pénétration. Dans les chambres alpha, l'échantillon est placé sous vide pour éviter l'interférence des particules ou des gaz présents dans l'air, qui pourraient absorber ou disperser les particules alpha. Le vide permet également d'assurer que les particules alpha émises par l'échantillon atteignent directement le détecteur sans pertes dues à l'interaction avec des molécules d'air, garantissant ainsi des mesures plus précises et fiables. Cette configuration est particulièrement importante pour des isotopes émetteurs alpha où la précision des mesures dépend fortement de la protection contre les effets de l'air.

Cette précision permet une identification spécifique des isotopes, chaque pic du spectre étant lié à l'énergie de désintégration d'un élément particulier. L'intensité des pics dans le spectre est proportionnelle à l'activité des radionucléides présents dans l'échantillon, permettant ainsi de quantifier la concentration de chaque isotope.

3. L'analyse des spectres alpha

3.1. Identification des pics énergétiques

Chaque isotope émetteur alpha possède une énergie de désintégration spécifique qui dépend de la différence d'énergie entre l'état initial du noyau instable et l'état final (noyau fils + particule alpha). Par conséquent, le spectre alpha d'un échantillon peut présenter plusieurs pics, chacun correspondant à un isotope distinct. Par exemple, un pic autour de 4,8 MeV indique la présence de radium-226 (^{226}Ra), tandis qu'un pic à 5,1 MeV peut signaler du plutonium-239 (^{239}Pu). Contrairement aux spectres bêta (qui sont continus), les spectres alpha montrent des pics énergétiques discrets correspondant aux énergies propres des isotopes.

3.2. Calibration du détecteur

La calibration est essentielle pour obtenir des mesures précises et fiables. Elle se fait en deux étapes principales : **la calibration en énergie** et **la détermination du rendement de comptage**.

Calibration en énergie (idem spectrométrie gamma) : Cette première étape permet de relier les signaux électriques (en volts) aux énergies des particules alpha. En utilisant des sources standards dont les énergies alpha sont connues, on étalonne le détecteur pour que chaque pic mesuré corresponde à l'énergie de désintégration de l'isotope émetteur. Cette calibration est fondamentale pour garantir que les pics mesurés représentent fidèlement les énergies des isotopes émetteurs, facilitant leur identification.

Détermination du rendement de comptage : Connaître l'efficacité du détecteur, c'est-à-dire sa capacité à détecter toutes les particules alpha émises, est essentiel pour quantifier les isotopes. Cette efficacité dépend de divers facteurs, notamment l'angle solide, la distance entre la source et le détecteur, ainsi que les propriétés du détecteur. L'angle solide est le paramètre clé affectant le nombre de particules détectées par rapport au nombre total de particules émises. Il dépend de la géométrie du montage expérimental, en particulier de la distance et de la surface du détecteur. Plus le détecteur est proche et plus sa surface est grande, plus l'angle solide augmente, interceptant ainsi une plus grande proportion des particules émises. Cela améliore le nombre de coups enregistrés et augmente la précision des mesures.

Le rendement de comptage du détecteur est déterminé en utilisant des sources calibrées dont l'activité est connue. Elle se détermine en calculant le rapport entre le nombre de particules détectées et le nombre total de particules émises. Cela permet de corriger les mesures et de quantifier précisément l'activité des isotopes, en tenant compte des pertes liées à la géométrie et aux limitations de détection.

3.3. Résolution spectrale et facteurs expérimentaux

La bonne résolution spectrale d'un détecteur alpha est essentielle pour distinguer les isotopes proches en énergie, permettant une identification précise des éléments présents. Plusieurs paramètres expérimentaux influencent cette résolution et la qualité du spectre obtenu :

- Distance source-détecteur : Une trop grande distance peut réduire la quantité de particules alpha atteignant le détecteur et augmenter la dispersion des trajectoires, ce qui diminue la précision.
- Collimation : La collimation permet de concentrer les particules alpha en une trajectoire précise, augmentant ainsi la qualité du signal et la résolution spectrale.
- Épaisseur des échantillons : Des échantillons trop épais peuvent absorber une partie des particules alpha, ce qui modifie les mesures et diminue la précision de l'analyse.

3.4. Quantification des radionucléides

La quantification des radionucléides par spectrométrie alpha repose sur la relation directe entre l'intensité des pics et l'activité des radionucléides présents dans l'échantillon. En effet, plus un radionucléide présente un grand nombre de désintégrations par unité de temps, plus l'intensité du pic associé dans le spectre alpha sera élevée. Cette proportionnalité entre l'activité (en becquerels, Bq) et l'intensité des pics permet de déterminer la concentration de chaque

radionucléide en convertissant le nombre de coups détectés en valeur d'activité. Pour convertir le nombre de coups en becquerels, il est nécessaire de connaître **le rendement de comptage** du détecteur afin de prendre en compte les pertes dues à la géométrie du montage et à la probabilité d'interaction des particules avec le détecteur.

L'activité d'un radionucléide se détermine à partir de la formule suivante :

$$A = \frac{(\text{coups}_{\text{éch}} - \text{coups}_{\text{BdF}})}{t \cdot I_E \cdot \varepsilon}$$

Et son incertitude associée :

$$u_A = A \times \sqrt{\left(\frac{u_{\text{coups}_{\text{éch}}}}{\text{coups}_{\text{éch}}}\right)^2 + \left(\frac{u_{\text{coups}_{\text{BdF}}}}{\text{coups}_{\text{BdF}}}\right)^2 + \left(\frac{u_\varepsilon}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{u_{I_E}}{I_E}\right)^2 + \Delta_{\text{syst}}^2}$$

Avec :

- A l'activité en Bq,
- $\text{coups}_{\text{éch}}$ et $\text{coups}_{\text{BdF}}$ le nombre de coups intégrés dans la région d'intérêt (pic d'intérêt) pour l'échantillon et le bruit de fond respectivement,
- t le temps de comptage en secondes,
- I_E l'intensité de la raie à l'énergie E en %,
- ε le rendement de comptage en %,
- Δ_{syst} les erreurs systématiques (prélèvements, pesées, etc...)

Le bruit de fond (background) est constitué des radiations naturelles ou des autres sources environnementales et doit être soustrait du signal total pour obtenir une mesure précise de l'activité du radionucléide.

4. Préparations pour l'analyse d'échantillons

En raison de la faible portée des particules alpha dans la matière, la mesure précise des émetteurs alpha nécessite une préparation minutieuse de l'échantillon. Pour obtenir des résultats fiables en termes de résolution et d'efficacité de comptage, il est essentiel de préparer l'échantillon sous forme de couche mince pour maximiser l'émission directe des particules vers le détecteur et minimiser les effets de réabsorption dans la matrice. Parmi les méthodes les plus courantes, on retrouve l'**électrodéposition**, qui consiste à déposer le radionucléide sur un support conducteur sous l'effet d'un courant électrique, assurant ainsi une distribution uniforme de la matière. L'**évaporation sous vide** est une autre technique où le radionucléide est vaporisé puis condensé en une fine couche sur un substrat, ce qui permet également d'obtenir une couche homogène et mince. D'autres méthodes incluent le **dépôt spontané**, où le radionucléide se dépose naturellement sur un substrat par réaction chimique. La **micro-précipitation suivie d'une filtration sur disques**, où des précipités de radionucléides sont formés, est une technique simple créant une fine couche de particules. Les **supports chélatants** peuvent également être utilisés pour fixer sélectivement certains radionucléides grâce à des complexes chimiques, permettant ainsi de concentrer et de déposer précisément le radionucléide d'intérêt. Ces différentes techniques permettent de préparer des échantillons sous forme de couches extrêmement fines, optimisant l'efficacité de détection et la résolution spectrale, et garantissant une quantification précise des radionucléides dans l'échantillon.

III. PARTIE EXPERIMENTALE

1. Calibration en énergie

Étapes préliminaires : réaliser une mesure de bruit de fond avant le lancement des acquisitions.

- Sur l'appareil, laisser votre encadrant mettre à compter une source standard multi-radionucléides SC504MA (^{239}Pu , ^{241}Am , ^{244}Cm) à disposition pendant 180 secondes.
- Identifier les pics énergétiques sur le spectre obtenu à l'aide de la table des radionucléides fournie.
- Relever les écarts éventuels entre les énergies des pics mesurés et les énergies théoriques.

2. Caractérisation du détecteur

- A l'aide du certificat de la source standard multi-radionucléides SC504MA (^{239}Pu , ^{241}Am , ^{244}Cm), déterminer le rendement de comptage du détecteur pour trois distances source-détecteur et sur les deux détecteurs mis à disposition.
- Déterminer la distance à appliquer pour ce type de support dans ce TP et pour chaque détecteur.

3. Analyse du polonium dans les eaux d'un ancien site minier

Afin de déterminer les teneurs en ^{210}Po dans les eaux en sortie d'un ancien site d'extraction du minerai d'uranium ($V_{\text{échantillon}} = 20 \text{ mL}$), une expérience de déposition spontanée du polonium a été réalisée par réduction vers sa forme métallique sur un disque en nickel.

Au début de cette préparation, un traceur de ^{209}Po ($V_{\text{traceur}} = 50 \mu\text{L}$) a été ajouté afin de déterminer le rendement global (préparation + comptage) pour la quantification du ^{210}Po dans l'échantillon.

Votre encadrant vous fournira le disque ainsi préparé.

- Discuter avec votre encadrant du disque fourni et noter vos observations.
- Visualiser le spectre obtenu par la mesure de ce disque en spectrométrie alpha.

IV. COMPTE RENDU – TP-1 : SPECTROMETRIE ALPHA

Date : Groupe : Noms - Prénoms : Enseignant de la
séance :

N'oubliez pas de corriger vos résultats de la décroissance radioactive !

1. Calibration en énergie

1) Commenter la calibration en énergie réalisée :

2. Caractérisation du détecteur

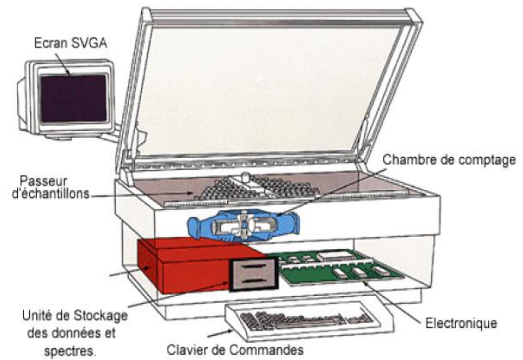
- 1) Calculer le rendement de comptage pour les trois distances source-détecteur et pour chaque détecteur avec leur incertitude associée :

4) Calculer le rendement global (préparation + comptage) et son incertitude :

5) En détaillant vos calculs, en déduire l'activité en ^{210}Po dans l'échantillon (en $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$) et son incertitude :

6) Justifier la présence de ^{210}Po dans l'échantillon par rapport à son origine :

TP-2 : SCINTILLATION LIQUIDE



I. OBJECTIFS DU TP

- Comprendre les principes fondamentaux de la scintillation liquide.
- Apprendre à utiliser un compteur à scintillation liquide (efficacité et traitement de résultats).
- Analyser des échantillons pour la détection de radionucléides.
- Évaluer les performances analytiques d'un compteur à scintillation liquide.

II. RAPPELS THEORIQUES

1. Principe de la scintillation liquide

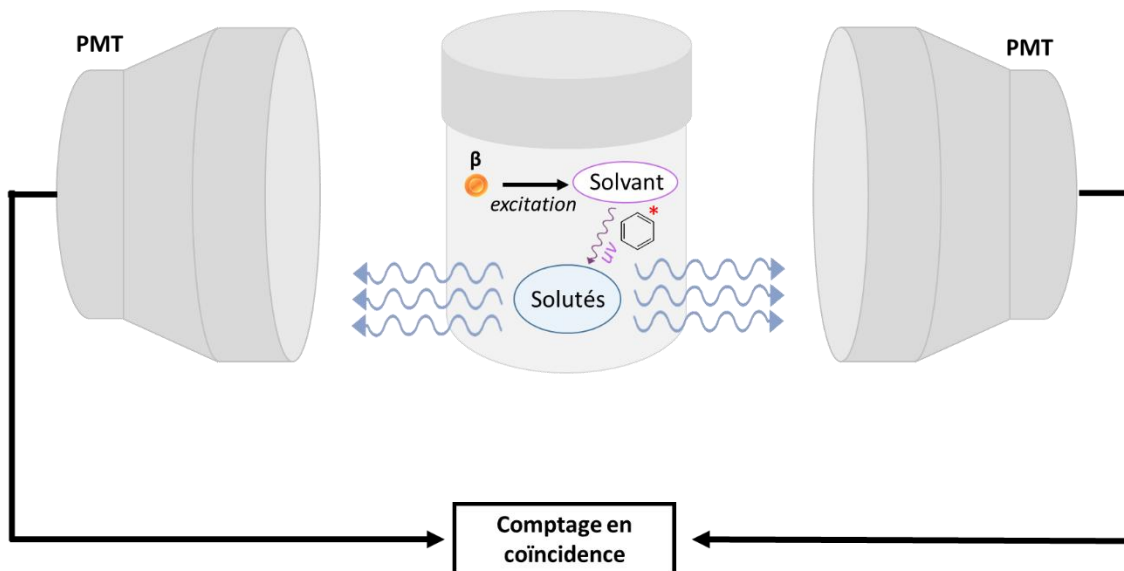
La scintillation liquide est une technique de détection et de mesure de la radioactivité, en particulier des rayonnements bêta et de certains rayonnements alpha, à partir d'un échantillon sous forme liquide.

Elle repose sur le principe de la scintillation, c'est-à-dire la conversion de l'énergie des particules ionisantes (alpha, bêta, gamma, X et neutrons) en lumière, qui est ensuite détectée et analysée pour identifier et quantifier l'activité des radionucléides présents dans un échantillon.

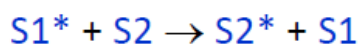
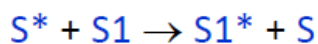
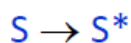
Ce processus s'établit en cinq grandes étapes :

1. **Ajout de liquide scintillant** : l'échantillon sous forme liquide est mélangé à un liquide scintillant contenant un solvant organique et des solutés (molécules fluorescentes).
2. **Interaction et excitation des molécules du solvant** : les particules ionisantes provenant de la désintégration radioactive des radionucléides présents dans l'échantillon interagissent avec les molécules du solvant organique. Cette interaction provoque l'excitation des molécules du solvant, les plaçant dans un état excité.

3. **Retour à l'état stable avec émission de rayonnements UV** : Les molécules excitées retournent rapidement à un état stable en libérant l'énergie absorbée sous forme de lumière ultraviolette (UV).
4. **Transfert d'énergie et émission de lumière** : Cette lumière UV excite par la suite les molécules fluorescentes d'un soluté primaire qui transfère cette énergie au soluté secondaire. Ce soluté secondaire se désexcite enfin en émettant de la lumière (photons de fluorescence), dans une plage entre 300 et 450 nm.
5. **Détection par les photomultiplicateurs** : les photons de fluorescence sont émis de façon isotrope et sont captés par deux photomultiplicateurs (PMT) situés autour du tube. Ces PMT amplifient le signal lumineux et le convertit en un signal électrique proportionnel à l'énergie et à l'activité des particules ionisantes détectées. La détection simultanée par deux PMT permet de s'assurer que les flashes lumineux détectés proviennent d'une désintégration radioactive de l'échantillon : cette synchronisation est appelée **comptage en coïncidence**.



Le transfert d'énergie dans le liquide scintillant est détaillé ci-dessous : excitations du solvant (S), puis des solutés (molécules fluorescentes) primaire (S1) et secondaire (S2).



S: molécule à l'état stable

S*: molécule à l'état excité

$h\nu$: photon de fluorescence

2. Analyse des spectres de scintillation liquide

2.1. Allure des spectres

Le spectre de scintillation représente l'intensité de la lumière émise (nombre de coups mesurés par minutes) en fonction de l'énergie des particules détectées. Un radionucléide émetteur bêta génère un spectre de scintillation avec une distribution continue, typique des émetteurs bêta, tandis qu'un émetteur alpha produit un pic à une énergie spécifique. En effet, comme l'énergie des désintégrations bêta n'est pas monoénergétique, les événements enregistrés ne le sont pas non plus. Dans le cas de la scintillation liquide, la scintillation résulte d'une série de processus physiques où l'énergie déposée par les radiations dans le scintillant est transformée en lumière, puis convertie en un signal électrique. Ce signal est une réponse continue à une gamme de diverses énergies déposées, influencée par la nature des particules, la distribution d'énergie et les caractéristiques du scintillant. De plus, la résolution énergétique d'un détecteur à scintillation liquide est bien inférieure à celle des détecteurs tels que les semi-conducteurs étudiés dans les TP-1 et TP-3. Pour l'ensemble de ces raisons, les spectres de scintillation liquide présentent de façon générale une **distribution continue**, contrairement aux spectres alpha ou gamma qui montrent des pics énergétiques discrets, correspondant aux énergies propres des isotopes.

2.2. Fenêtre d'analyse et facteur de mérite (FM)

Les instruments de scintillation liquide permettent toutefois de sélectionner une plage d'énergie, ou "**fenêtre d'analyse**", pour se concentrer sur une partie du spectre correspondant à l'isotope recherché. Cela permet notamment de réduire les interférences (minimisation du bruit de fond) et d'améliorer la précision des mesures. La fenêtre d'analyse optimum est déterminée pour un radionucléide et dans une matrice donnée avec le calcul du **facteur de mérite (FM)** :

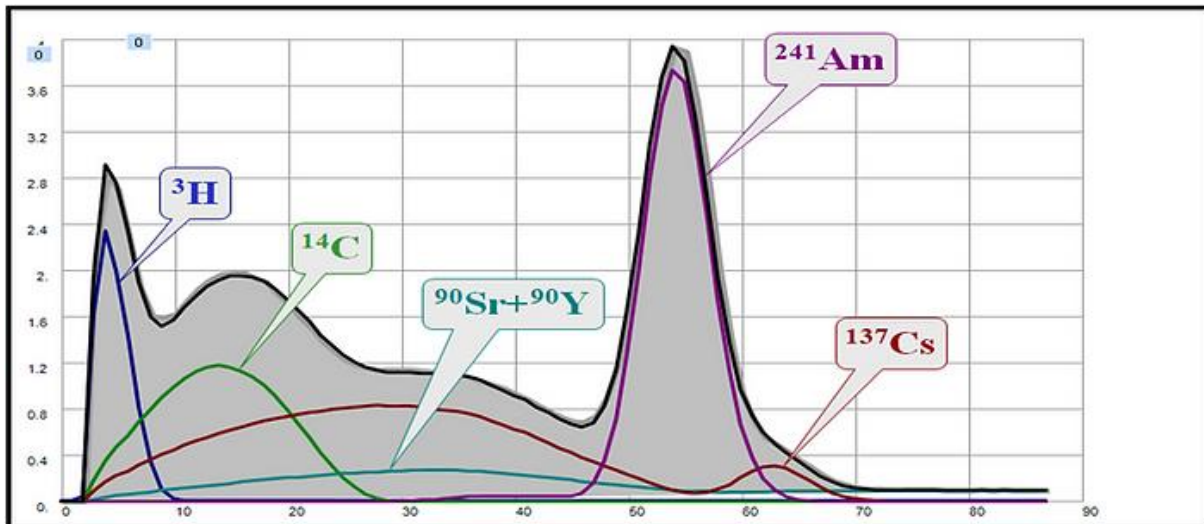
$$FM = \frac{(\epsilon)^2}{\text{cpm}_{\text{bdf}}}$$

Avec :

- cpm_{BDF} le nombre de coups par minutes du bruit de fond dans la fenêtre d'analyse,
- ϵ l'efficacité de comptage en %.

2.3. Déconvolution des spectres

Dans le cas de spectres plus complexes, la **déconvolution des signaux** peut permettre de séparer les réponses superposées provenant de différents radionucléides d'un échantillon analysé. Cette déconvolution repose généralement sur des techniques mathématiques telles que les moindres carrés, la convolution gaussienne, et la maximisation de l'entropie. Ces méthodes permettent une meilleure interprétation des spectres complexes, en isolant les contributions des différents isotopes et en fournissant des résultats précis pour la quantification des radionucléides.



2.4. Quantification des radionucléides

Tout comme la spectrométrie alpha et gamma, la quantification des radionucléides par scintillation liquide repose sur la relation directe entre l'intensité des pics et l'activité des radionucléides présents dans l'échantillon. Cette proportionnalité entre l'activité (en becquerels, Bq) et l'intensité des pics permet de déterminer la concentration de chaque radionucléide en convertissant le nombre de coups détectés en valeur d'activité. Pour convertir le nombre de coups en becquerels, il est nécessaire de connaître **l'efficacité de comptage** du détecteur afin de prendre en compte notamment les phénomènes d'affaiblissement du signal lumineux (voir la partie 3. suivante).

L'activité d'un radionucléide se détermine à partir de la formule suivante :

$$A = \frac{(\text{cpm}_{\text{éch}} - \text{cpm}_{\text{BdF}})}{60 \cdot \varepsilon}$$

Et son incertitude associée :

$$u_A = A \times \sqrt{\left(\frac{u_{\text{cpm}_{\text{éch}}}}{\text{cpm}_{\text{éch}}}\right)^2 + \left(\frac{u_{\varepsilon}}{\varepsilon}\right)^2 + \Delta_{\text{syst}}^2}$$

Avec :

- A l'activité en Bq,
- $\text{cpm}_{\text{éch}}$ le nombre de coups par minutes mesurés pour l'échantillon dans la fenêtre d'analyse,
- ε le rendement de comptage en %,
- Δ_{syst} les erreurs systématiques (prélèvements, pesées, etc...)

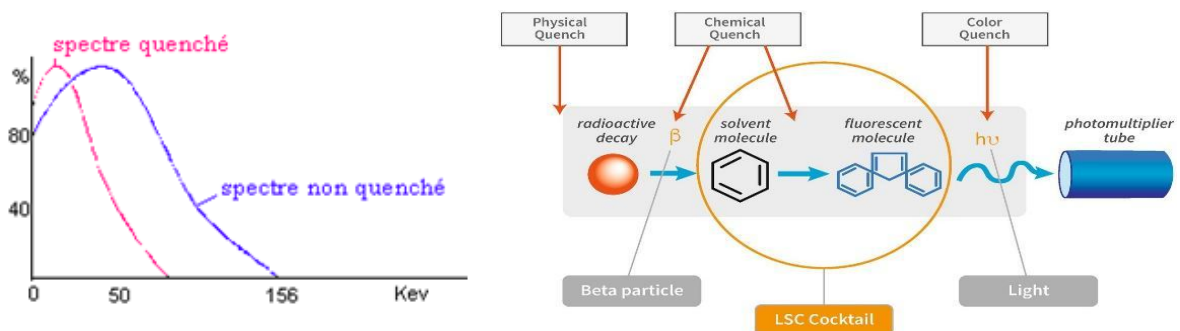
Le bruit de fond (background) est constitué des radiations naturelles ou des autres sources environnementales et doit être soustrait du signal total pour obtenir une mesure précise de l'activité du radionucléide.

3. Phénomène de quenching et courbe d'efficacité (ou courbe de quenching)

Le quenching désigne l'ensemble des phénomènes conduisant à l'affaiblissement du signal lumineux, réduisant le nombre de photons émis atteignant effectivement les photomultiplicateurs. En conséquence, ces phénomènes conduisent à une sous-estimation de l'activité mesurée ainsi qu'à un déplacement du spectre d'énergie détecté du radionucléide vers une énergie plus faible.

On distingue trois différents types de quenching :

- **Quenching physique** : résulte de l'hétérogénéité physique du milieu (charge saline, présence de suspensions...).
- **Quenching chimique** : des espèces chimiques présentes dans le tube désactivent les molécules du solvant et dissipent donc l'énergie avant l'émission de lumière.
- **Quenching optique** : réduction de l'intensité lumineuse due à des changements dans les propriétés optiques du scintillant, souvent lié à la présence d'espèces qui absorbent l'énergie entre 300 et 600 nm (marqueurs rouges, microorganismes...).



Plusieurs techniques ont été développées pour mesurer le degré de quenching se produisant lors de la mesure d'un échantillon. La méthode la plus simple et recommandée pour les mesures de faibles activités repose sur l'utilisation d'un standard externe, exprimée sous l'appellation **tSIE** (Transformée de l'Index Spectral du standard Externe). Pour cela, une source standardisée de ^{133}Ba est placée sous le tube contenant l'échantillon avant chaque comptage. L'émission gamma très énergétique de la source traverse le tube et excite le soluté du liquide scintillant. Le signal obtenu (quenché) est enfin comparé à un signal de référence (non quenché) afin de déterminer le tSIE de l'échantillon. Le tSIE calculé varie entre 100 et 1000 et diminue lorsque le quenching augmente.

L'**efficacité de comptage** d'une mesure en scintillation liquide est donc directement liée à la valeur du tSIE. Pour la déterminer, il est nécessaire de réaliser une **courbe de quenching** : une courbe (polynôme de degré 2 ou 3) représentant l'évolution de l'**efficacité de comptage en fonction du tSIE**. Dans cet objectif, une série d'échantillons contenant une activité connue dans une même matrice est dopée avec une quantité croissante d'agent quenchant. L'efficacité de comptage est recalculée pour chaque tube et son évolution est tracée en fonction du tSIE calculé par l'appareil de mesure.

III. PARTIE EXPERIMENTALE

1. Optimisation du ratio $V_{\text{échantillon}} / V_{\text{liquide scintillant}}$ ($V_{\text{total}} = 5 \text{ mL}$)

- a) Préparer les solutions A, B et C dans des tubes de scintillation à partir d'une source de ^3H et du liquide scintillant Ultima Gold comme indiqué dans le tableau ci-dessous :

Nom tube	Volume de NaCl 0,1 M (mL)	Volume source de ^3H (μL)	Volume de liquide scintillant (mL)
A	3,45	50	1,5
B	2,95	50	2
C	2,45	50	2,5

- b) Sur l'appareil, mettre à compter chaque tube pendant 5 min.
- c) Visualiser le rapport d'analyse et relever les données pour la fenêtre 0-2000 keV.
- d) Déterminer le ratio optimal $V_{\text{échantillon}} / V_{\text{liquide scintillant}}$ dans les conditions de ce TP avant de passer à la suite.

2. Courbe de quenching

- a) Réaliser 1 courbe de quenching avec un agent quenchant chimique (nitrométhane). Préparer vos solutions (5 mL) à partir du meilleur ratio obtenu à la question précédente en complétant le tableau ci-dessous :

Nom	Volume de NaCl 0,1 M (mL)	Volume source de ^3H (μL)	Volume d'agent quenchant (μL)	Volume de liquide scintillant (mL)
Bdf		0	0	
1		50	10	
2		50	20	
3		50	30	
4		50	40	
5		50	50	

- b) Sur l'appareil, mettre à compter pendant 5 min par tube.
- c) Visualiser le rapport d'analyse et relever les données pour la fenêtre 0-2000 keV.

3. Mesure d'un échantillon inconnu

- a) Un échantillon d'effluent d'un CNPE est mis à disposition. Préparer l'échantillon pour l'analyser par scintillation liquide selon le protocole mis en place lors de ce TP.
- b) Sur l'appareil, mettre à compter l'échantillon inconnu pendant 5 min.
- c) Visualiser le rapport d'analyse et relever les données pour la fenêtre 0-2000 keV.

4. Contrôles radiologiques (frottis)

- a) A la fin de vos manipulations, réaliser les contrôles radiologiques de votre matériel et mettre à compter selon le protocole de contrôle.

IV. COMPTE RENDU – TP-2 : SCINTILLATION LIQUIDE

Date : Groupe : Noms - Prénoms : Enseignant de la
séance :

N'oubliez pas de corriger vos résultats de la décroissance radioactive !

1. Optimisation du ratio $V_{\text{échantillon}} / V_{\text{liquide scintillant}}$ ($V_{\text{total}} = 5 \text{ mL}$)

1) Calculer l'activité en ^3H introduite dans chaque tube en becquerel (Bq) :

2) A l'aide du rapport d'analyse, calculer l'efficacité de comptage pour chaque ratio $V_{\text{échantillon}} / V_{\text{liquide scintillant}}$ préparé :

3) Calculer le facteur de mérite (FM) pour chaque ratio $V_{\text{échantillon}} / V_{\text{liquide scintillant}}$ et en déduire le ratio optimal :

4) Commenter :

2. Courbe de quenching

1) Calculer l'efficacité de comptage pour chaque échantillon analysé :

2) A l'aide d'un fichier Excel, tracer la courbe d'efficacité (ou courbe de quenching). Enregistrer le fichier Excel (à rendre) et indiquer l'équation de la courbe obtenue :

3) Commenter :

3. Mesure d'un échantillon inconnu

1) A partir de la courbe de quenching obtenue précédemment, déterminer l'activité en ^3H de l'échantillon inconnu (en $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$) :

2) Calculer l'incertitude associée :

3) Commenter :

TP-3 : SPECTROMETRIE GAMMA

I. OBJECTIFS DU TP

- Comprendre les principes fondamentaux de la spectrométrie gamma.
- Apprendre à utiliser un spectromètre gamma (étalonnage en énergie, efficacité/géométrie et traitement de résultats).
- Identifier des radionucléides en fonction de leurs propriétés et de celles de leurs descendants.
- Analyser des échantillons pour la détection et la quantification de radionucléides.
- Évaluer les performances analytiques d'un spectromètre gamma.

II. RAPPELS THEORIQUES

1. La radioactivité gamma

La radioactivité gamma est l'émission de photons très énergétiques par des noyaux instables cherchant à se stabiliser après une désintégration. Contrairement aux rayonnements alpha et bêta, les rayons gamma n'ont ni masse ni charge, ce qui leur confère un fort pouvoir de pénétration dans la matière. En effet, les photons gamma peuvent traverser plusieurs centimètres de matière dense comme le plomb et des mètres dans les tissus humains, nécessitant des protections épaisses pour réduire leur exposition. La radioactivité gamma se produit souvent après une désintégration alpha ou bêta, lorsque le noyau résultant est dans un état excité. Pour revenir à un état stable, il libère de l'énergie excédentaire sous forme de rayons gamma.

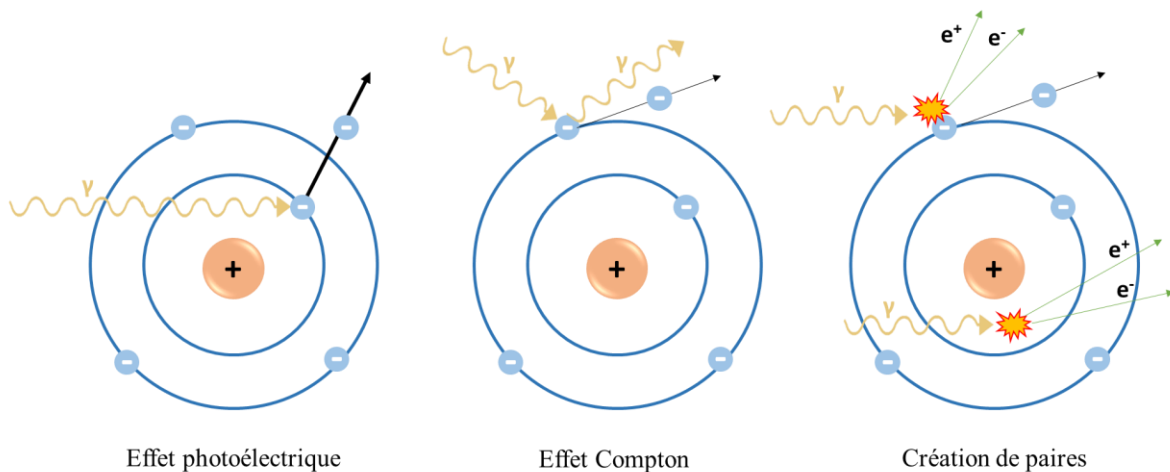
2. Principe de la spectrométrie gamma

La spectrométrie gamma repose sur la détection et l'analyse de l'énergie des photons gamma émis par un échantillon radioactif. L'objectif principal est de caractériser et de quantifier les isotopes radioactifs présents.

2.1. Interactions gamma-détecteur

Les photons gamma interagissent avec la matière selon trois processus principaux, qui influencent directement la détection dans un spectromètre :

- **Effet photoélectrique** : Un photon gamma transfère toute son énergie à un électron, qui est éjecté de l'atome. L'énergie mesurée correspond directement à celle du photon incident, ce qui produit un pic complet dans le spectre.
- **Effet Compton** : Le photon gamma transfère une partie de son énergie à un électron, puis est dévié avec une énergie réduite. Cet effet produit une répartition d'énergies (plateau Compton) dans le spectre, car le photon peut interagir à divers angles.
- **Création de paires** : Si l'énergie du photon dépasse 1,022 MeV, il peut se transformer en une paire électron-positron au voisinage du noyau. Après annihilation, des photons de 511 keV sont émis, créant des signatures spécifiques dans le spectre. Cette énergie correspondant à la somme des masses au repos de l'électron et du positron ($2 * 511 \text{ keV} = 1,022 \text{ MeV}$).



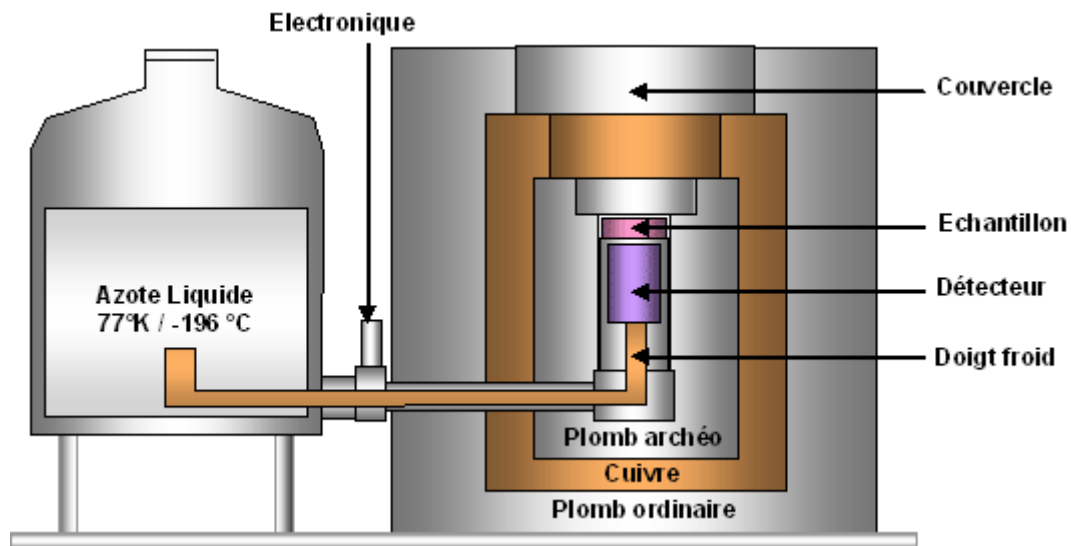
En résumé, les rayonnements gamma sont invisibles pour le détecteur : ce sont les électrons qu'ils libèrent lors de leurs interactions avec la matière qui sont détectés.

2.2. Les différents types de détecteurs

Les détecteurs gamma sont choisis en fonction de la résolution et de la sensibilité requises. Les principaux types sont :

- **Détecteur NaI(Tl)** (iodure de sodium dopé au thallium) : Il s'agit d'un détecteur à scintillation qui fonctionne en absorbant l'énergie des rayons gamma via l'effet photoélectrique, puis en réémettant cette énergie sous forme de photons. Ces photons sont convertis en impulsions électroniques par un tube photomultiplicateur. Ces détecteurs sont peu coûteux, faciles à utiliser et peu affectés par la température ou l'humidité, mais leur résolution en énergie est limitée, ce qui ne leur permet pas de distinguer des pics gamma proches de moins de 80 keV.
- **Détecteur GeLi** (germanium au lithium) : Utilisé couramment en laboratoire, ce détecteur offre une résolution supérieure à celle du NaI(Tl). Il fonctionne par semi-conductivité, avec du germanium dopé au lithium qui détecte les rayons gamma via l'effet photoélectrique. Le détecteur est refroidi à des températures proches de celles de l'azote liquide et des tensions allant jusqu'à 4 kV sont appliquées aux cristaux. Le champ électrique accélère les photoélectrons, générant une impulsion au pré-amplificateur, proportionnelle à l'énergie du rayon gamma initial.
- **Détecteur HPGe** (germanium hyperpur) : Le détecteur HPGe, également basé sur la semi-conductivité, offre une résolution énergétique exceptionnelle bien supérieure à celle des détecteurs NaI(Tl) et GeLi. Utilisé en spectrométrie gamma de haute précision, il nécessite également un refroidissement à l'azote liquide pour minimiser les bruits thermiques.

Bien qu'il soit plus coûteux et exige des conditions strictes, le **détecteur HPGe** est souvent préféré pour l'analyse de haute précision en laboratoire en raison de sa capacité à discerner les énergies gamma avec une grande précision (jusqu'à 0,8 keV).



Ces détecteurs sont inclus dans un château de plomb, doublé de cuivre, afin de les protéger des rayonnements parasites externes provenant principalement du rayonnement cosmique.

3. L'analyse des spectres gamma

Comme vu précédemment, les photons gamma interagissent avec le détecteur, ce qui génère des impulsions électriques dont l'amplitude est proportionnelle à l'énergie des photons captés. Par la suite, un système électronique traite ces impulsions et les convertit en un spectre de comptage, qui représente l'intensité en fonction de l'énergie des photons. Ce spectre permet ainsi d'analyser les caractéristiques du rayonnement gamma et d'identifier les radionucléides présents.

3.1. Identification des pics énergétiques

Chaque isotope émetteur gamma possède des pics d'énergie caractéristiques, liés aux transitions énergétiques du noyau fils après désintégration. Ces pics correspondent à l'énergie spécifique des rayons gamma émis lors des transitions du noyau excité à son état fondamental. Les spectres gamma sont souvent plus complexes que les spectres alpha, car les rayons gamma peuvent interagir de différentes manières avec le détecteur, ce qui influence directement l'apparition des pics. Ces interactions permettent d'analyser l'énergie des rayons gamma émis, d'identifier les isotopes présents dans l'échantillon et d'interpréter la structure du spectre de manière détaillée.

3.2. Calibration du détecteur

La calibration est essentielle pour obtenir des mesures précises et fiables. Elle se fait en deux étapes principales : **la calibration en énergie** et **la détermination du rendement de comptage**.

Calibration en énergie (idem spectrométrie alpha) : Cette première étape permet de relier les signaux électriques (en volts) aux énergies des rayons gamma. En utilisant des sources standards dont les énergies gamma sont connues, on étalonne le détecteur pour que chaque pic

mesuré correspond à l'énergie de désexcitation de l'isotope émetteur. Cette calibration est fondamentale pour garantir que les pics mesurés représentent fidèlement les énergies des isotopes émetteurs, facilitant leur identification.

Détermination du rendement de comptage : Connaître l'efficacité du détecteur en spectrométrie gamma, c'est-à-dire sa capacité à détecter les rayons gamma émis par les isotopes (via les électrons libérés lors de l'interaction gamma-détecteur, voir partie 2.1), est essentiel pour quantifier précisément ces isotopes. Cette efficacité dépend de plusieurs facteurs, notamment la géométrie de la source, la distance entre la source et le détecteur, et les propriétés du détecteur lui-même. Contrairement à la spectrométrie alpha où les échantillons sont généralement préparés sous forme de couche mince pour assurer une détection optimale des particules alpha, la spectrométrie gamma permet une plus grande flexibilité dans la préparation des échantillons. Ceci est intimement lié aux propriétés intrinsèques du photon (gamma). En effet, les échantillons solides ou liquides et de différentes densités peuvent être placés dans une variété de contenants (fioles, tubes, boîtes, etc.) dans la chambre de détection, ce qui génère des géométries de mesure différentes. Cette diversité géométrique a un impact important sur le rendement de comptage, car l'angle solide et la configuration de la source par rapport au détecteur influencent directement le nombre de photons gamma détectés. **Le rendement de comptage est donc fortement dépendant de cette géométrie de détection.**

Le rendement de comptage est déterminé pour chaque géométrie en utilisant des sources calibrées dont l'activité est connue. Il se calcule en prenant le rapport entre le nombre de photons gamma détectés et le nombre total de photons émis. Cette mesure permet de corriger les pertes liées à la géométrie de l'échantillon et d'obtenir une quantification précise de l'activité des isotopes présents.

3.3. Quantification des radionucléides

Tout comme la spectrométrie alpha, la quantification des radionucléides par spectrométrie gamma repose sur la relation directe entre l'intensité des pics et l'activité des radionucléides présents dans l'échantillon. En effet, plus un radionucléide présente un grand nombre de désexcitation par unité de temps, plus l'intensité du pic associé dans le spectre gamma sera élevée. Cette proportionnalité entre l'activité (en becquerels, Bq) et l'intensité des pics permet de déterminer la concentration de chaque radionucléide en convertissant le nombre de coups détectés en valeur d'activité. Pour convertir le nombre de coups en becquerels, il est nécessaire de connaître **le rendement de comptage** du détecteur afin de prendre en compte les pertes dues à la géométrie du montage et à la probabilité d'interaction des particules avec le détecteur.

L'activité d'un radionucléide se détermine à partir de la formule suivante :

$$A = \frac{(\text{coups}_{\text{éch}} - \text{coups}_{\text{BdF}})}{t \cdot I_E \cdot \varepsilon}$$

Et son incertitude associée :

$$u_A = A \times \sqrt{\left(\frac{u_{\text{coups}_{\text{éch}}}}{\text{coups}_{\text{éch}}}\right)^2 + \left(\frac{u_{\text{coups}_{\text{BdF}}}}{\text{coups}_{\text{BdF}}}\right)^2 + \left(\frac{u_{\varepsilon}}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{u_{I_E}}{I_E}\right)^2 + \Delta_{\text{syst}}^2}$$

Avec :

- A l'activité en Bq,
- $\text{coups}_{\text{éch}}$ et $\text{coups}_{\text{BdF}}$ le nombre de coups intégrés dans la région d'intérêt (pic d'intérêt) pour l'échantillon et le bruit de fond respectivement,
- t le temps de comptage en secondes,
- I_E l'intensité de la raie à l'énergie E en %,
- ε le rendement de comptage en %,
- Δ_{syst} les erreurs systématiques (prélèvements, pesées, etc...)

Le bruit de fond (background) est constitué des radiations naturelles ou des autres sources environnementales et doit être soustrait du signal total pour obtenir une mesure précise de l'activité du radionucléide.

III. PARTIE EXPERIMENTALE

Étapes préliminaires : réaliser une mesure de bruit de fond avant le lancement des acquisitions.

1. Identification des interactions gamma-détecteur

- a. Sur l'appareil, mettre à compter successivement les sources scellées de ^{137}Cs , ^{60}Co et ^{241}Am à disposition pendant 2 min chacune. Enregistrer les spectres obtenus.
- b. Identifier et attribuer les effets des émissions gamma pour chaque spectre obtenu à l'aide de la table des radionucléides fournie.

2. Calibration en énergie

- a. Mettre à compter la solution de ^{152}Eu à disposition pendant 5 min. Enregistrer le spectre obtenu.
- b. Relever les écarts éventuels entre les énergies des pics mesurés et les énergies théoriques à l'aide de la table des radionucléides fournie.

3. Caractérisation manuelle du détecteur

- a. A l'aide du certificat de ces sources scellées de ^{137}Cs , ^{60}Co et ^{241}Am , déterminer le rendement de comptage du détecteur.
- b. Réaliser à nouveau le comptage de l'une des sources scellées pendant 2 min à différentes distances du détecteur (au contact, 5 cm, 10 cm) et déterminer les rendements de comptage pour chaque distance.

4. Caractérisation du détecteur à l'aide de la modélisation des géométries de détection

Le logiciel du spectromètre gamma permet de réaliser un retraitement des données pour identifier les radionucléides présents et de les quantifier en prenant en compte l'efficacité de comptage liée à la géométrie de l'échantillon analysé.

Le logiciel sera exploité pour réaliser ce retraitement sur les spectres gamma des sources scellées obtenus uniquement pour la distance au contact du détecteur.

- a. Dans le logiciel « Geometry composer » sur le bureau, sélectionner et visualiser la géométrie des sources scellées.
- b. Utiliser le logiciel de l'appareil pour retraiter vos données en prenant en compte cette géométrie (uniquement pour la distance au contact). Les résultats seront édités sur un rapport d'analyse à la fin du traitement du logiciel. Les étapes à suivre sur le logiciel sont détaillées ci-dessous :

- Ouvrir le spectre à retraiter.
- Editer > Infos échantillons > Charger un étalonnage > Sélectionner « source scellée » > Charger > OK > OK.
- Analyse > B. Recherche des pics > 5. Par biblio (simple) > Sélection > SMART 2016 > Exécuter.
- Analyse > C. Calcul des surfaces > 2. Bibliothèque > Exécuter.
- Analyse > E. Correction des surfaces > 1. Par soustraction du BdF > Charger le fichier BdF > Sélection > Exécuter > OK.
- Analyse > F. Calcul des efficacités > 2. ISOCS... > OK > Chercher > Laboratory > Simplified beaker > « source scellée » > Ouvrir > Oui > Exécuter.
- Analyse > G. Identification / activité > 2. Id. avec calcul d'interférences > OK > Vérifier la bibliothèque et la géométrie indiquées > Exécuter.

Le rapport sera généré après quelques secondes.

5. Analyse d'un échantillon par spectrométrie gamma

- a. Dans le logiciel « Geometry composer », visualiser la modélisation de la géométrie de cet échantillon « test 8 ».
- b. Observer le spectre obtenu pour le comptage de cet échantillon inconnu et retraiter les données en prenant en compte la géométrie adéquate et les radionucléides de la bibliothèque « SMART 2016 ».
- c. Visualiser et enregistrer le rapport d'analyse.

IV. COMPTE RENDU – TP-3 : SPECTROMETRIE GAMMA

Date : Groupe : Noms - Prénoms : Enseignant de la
séance :

N'oubliez pas de corriger vos résultats de la décroissance radioactive !

1. Identification des interactions gamma-détecteur

- 1) Identifier et attribuer les effets des émissions gamma pour chaque spectre obtenu :

2. Calibration en énergie

1) Commenter la calibration en énergie réalisée :

3. Caractérisation manuelle du détecteur

1) Calculer le rendement de comptage pour les trois distances source-détecteur :

2) Commenter :

4. Caractérisation du détecteur à l'aide de la modélisation des géométries de détection

1) Calculer à nouveau le rendement de comptage (uniquement pour la distance au contact) :

2) Commenter :

5. Analyse d'échantillons par spectrométrie gamma

1) Identifier les radionucléides principalement présents et leur activité en Bq dans l'échantillon :

2) Conclure sur l'impact de la géométrie de détection dans l'analyse par spectrométrie gamma :